



PATENT  
0171-1043P

IN THE U.S. PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant: Kei MIYOSHI Conf.: UNKNOWN  
Appl. No.: 10/721,277 Group: UNKNOWN  
Filed: November 26, 2003 Examiner: UNKNOWN  
For: SILICONE RESIN COMPOSITION FOR LED  
DEVICES

L E T T E R

Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

DEC 12 2003

Sir:

Under the provisions of 35 U.S.C. § 119 and 37 C.F.R. § 1.55(a), the applicant(s) hereby claim(s) the right of priority based on the following application(s):

<u>Country</u>	<u>Application No.</u>	<u>Filed</u>
JAPAN	2002-347603	November 29, 2002

A certified copy of the above-noted application(s) is(are) attached hereto.

If necessary, the Commissioner is hereby authorized in this, concurrent, and future replies, to charge payment or credit any overpayment to Deposit Account No. 02-2448 for any additional fee required under 37 C.F.R. §§ 1.16 or 1.17; particularly, extension of time fees.

Respectfully submitted,

BIRCH, STEWART, KOLASCH & BIRCH, LLP

By   
Gerald M. Murphy, Jr., #28,977

GMM/las  
0171-1043P

P.O. Box 747  
Falls Church, VA 22040-0747  
(703) 205-8000

Attachment(s)

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

Kei MIYOSHI  
101721,277  
Filed 11-24-03  
BSKB, LLP  
(703) 205-8000  
Docket NO 0171-1043P  
1 of 1

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2 0 0 2 年 1 1 月 2 9 日

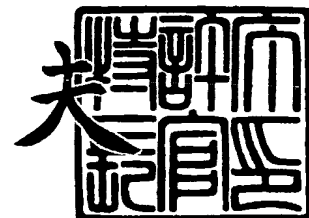
出 願 番 号  
Application Number: 特 願 2 0 0 2 - 3 4 7 6 0 3  
[ST. 10/C]: [ J P 2 0 0 2 - 3 4 7 6 0 3 ]

出 願 人  
Applicant(s): 信越化学工業株式会社

2 0 0 3 年 8 月 2 2 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号 出証特 2 0 0 3 - 3 0 6 8 9 5 9

【書類名】 特許願

【整理番号】 14495

【提出日】 平成14年11月29日

【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿

【国際特許分類】 C08L 83/00

【発明者】

    【住所又は居所】 群馬県碓氷郡松井田町大字人見 1 番地 1 0 信越化学工業株式会社 シリコン電子材料技術研究所内

    【氏名】 三好 敬

【特許出願人】

    【識別番号】 000002060

    【氏名又は名称】 信越化学工業株式会社

【代理人】

    【識別番号】 100079304

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 小島 隆司

【選任した代理人】

    【識別番号】 100114513

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 重松 沙織

【選任した代理人】

    【識別番号】 100120721

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 小林 克成

【手数料の表示】

    【予納台帳番号】 003207

    【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

    【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1  
【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 発光ダイオード素子用シリコン樹脂組成物

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 (A) 1 分子中に少なくとも 2 個のケイ素原子に結合したアルケニル基を有するシリコンレジン、

(B) 1 分子中に少なくとも 2 個のケイ素原子に結合した水素原子を有するオルガノハイドロジェンシラン及び／又はオルガノハイドロジェンポリシロキサン、

(C) 付加反応触媒

を必須成分とすることを特徴とする発光ダイオード (LED) 素子用シリコン樹脂組成物。

【請求項 2】 シリコン樹脂組成物が加熱硬化型であることを特徴とする請求項 1 記載の発光ダイオード (LED) 素子用シリコン樹脂組成物。

【請求項 3】 シリコン樹脂組成物が、

(A) 下記平均組成式 (1)

$$R_n Si O_{(4-n)/2} \quad (1)$$

(但し、式中 R は同一又は異種の置換又は非置換の一価炭化水素基、アルコキシ基又は水酸基で、全 R の 0.1 ~ 80 モル % がアルケニル基であり、n は  $1 \leq n < 2$  を満たす正数である。)

で示される 25℃での粘度が 10 mPa・s 以上の液状又は固体のオルガノポリシロキサン 100 重量部、

(B) 下記平均組成式 (2)

$$R'_a H_b Si O_{(4-a-b)/2} \quad (2)$$

(但し、式中 R' は脂肪族不飽和炭化水素基を除く同一又は異種の置換又は非置換の一価炭化水素基、a, b は  $0.7 \leq a \leq 2.1$ 、 $0.001 \leq b \leq 1.0$ 、かつ  $0.8 \leq a + b \leq 2.6$  を満たす正数である。)

で示される 1 分子中に少なくとも 2 個の Si-H 結合を有し、かつ 25℃での粘度が 1000 mPa・s 以下であるオルガノハイドロジェンポリシロキサン及び／又は  $R'_c Si H_{(4-c)}$  (但し、c は 1 又は 2) で示されるオルガノハイドロジェンシラン 2 ~ 100 重量部、

(C) 付加反応触媒

触媒量

を必須成分とすることを特徴とする請求項 1 又は 2 記載の発光ダイオード (LED) 素子用シリコン樹脂組成物。

【請求項 4】 (A) 成分のシリコンレジンが、下記平均組成式 (1-1)

$$R_p (C_6H_5)_q Si O_{(4-p-q)/2} \quad (1-1)$$

(但し、式中 R は同一又は異種の置換又は非置換の一価炭化水素基、アルコキシ基又は水酸基で、全 R の 0.1 ~ 80 モル% がアルケニル基であり、p, q は  $1 \leq p + q < 2$ 、 $0.20 \leq q / (p + q) \leq 0.95$  を満たす正数である。)

で示される 25℃ での粘度が 100 mPa・s 以上の液状又は固体のオルガノポリシロキサンである請求項 3 記載の発光ダイオード (LED) 素子用シリコン樹脂組成物。

【請求項 5】 (B) 成分のオルガノハイドロジェンポリシロキサンが、組成式 (2) の全 R' と H のうち 5 モル% 以上がフェニル基である請求項 3 又は 4 記載の発光ダイオード (LED) 素子用シリコン樹脂組成物。

【請求項 6】 (B) 成分のオルガノハイドロジェンポリシロキサンが、組成式 (2) の全 R' と H のうち 15 モル% 未満がフェニル基であるオルガノハイドロジェンポリシロキサンと、フェニル基が 15 モル% 以上であるオルガノハイドロジェンポリシロキサンの 1 : 9 ~ 9 : 1 (重量比) の混合物である請求項 3 又は 4 記載の発光ダイオード (LED) 素子用シリコン樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、発光ダイオード素子の保護、接着、波長変更・調整、レンズに使用される発光ダイオード (LED) 素子用シリコン樹脂組成物に関する。

【0002】

【従来の技術】

従来、発光ダイオード素子の封止材料としては、一般的にエポキシ樹脂が用いられている。シリコン樹脂に関しても特開平 10-228249 号公報や特開

平 1 0 - 2 4 2 5 1 3 号公報などでレンズ材への使用、特開 2 0 0 0 - 1 2 3 9 8 1 号公報では波長調整コーティングへの使用が試みられているが、実際の使用例は少ない。

【 0 0 0 3 】

一方、白色 L E D が注目される中で、これまで問題とされなかったエポキシ封止材の実使用中の紫外線などによる黄変や、小型化に伴う発熱量の増加に伴うクラックなどの問題が発生しており、対応が急務となっている。

【 0 0 0 4 】

【特許文献 1】

特開平 1 0 - 2 2 8 2 4 9 号公報

【特許文献 2】

特開平 1 0 - 2 4 2 5 1 3 号公報

【特許文献 3】

特開 2 0 0 0 - 1 2 3 9 8 1 号公報

【特許文献 4】

特開平 1 1 - 1 6 1 9 号公報

【 0 0 0 5 】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、上記事情に鑑みなされたもので、透明性に優れ、経時による変色の少ない硬化物を与える発光ダイオード（L E D）素子用シリコン樹脂組成物を提供することを目的とする。

【 0 0 0 6 】

【課題を解決するための手段及び発明の実施の形態】

本発明者は、上記目的を達成するために鋭意努力を行った結果、

（A） 1 分子中に少なくとも 2 個のケイ素原子に結合したアルケニル基を有するシリコンレジン、

（B） 1 分子中に少なくとも 2 個のケイ素原子に結合した水素原子を有するオルガノハイドロジェンシラン及び／又はオルガノハイドロジェンポリシロキサン、

（C） 付加反応触媒

を必須成分とする付加反応硬化型シリコン樹脂組成物、特に、

(A) 下記平均組成式 (1)



(但し、式中 R は同一又は異種の置換又は非置換の一価炭化水素基、アルコキシ基又は水酸基で、全 R の 0.1 ~ 80 モル% がアルケニル基であり、n は  $1 \leq n < 2$  を満たす正数である。)

で示される 25℃ での粘度が 10 mPa・s 以上の液状又は固体のオルガノポリシロキサン 100 重量部、

(B) 下記平均組成式 (2)



(但し、式中 R' は脂肪族不飽和炭化水素基を除く同一又は異種の置換又は非置換の一価炭化水素基、a, b は  $0.7 \leq a \leq 2.1$ 、 $0.001 \leq b \leq 1.0$ 、かつ  $0.8 \leq a + b \leq 2.6$  を満たす正数である。)

で示される 1 分子中に少なくとも 2 個の SiH 結合を有し、かつ 25℃ での粘度が 1000 mPa・s 以下であるオルガノハイドロジェンポリシロキサン及び／又は  $R'_c Si H_{(4-c)}$  (但し、c は 1 又は 2) で示されるオルガノハイドロジェンシラン 2 ~ 100 重量部、

(C) 付加反応触媒 触媒量

を必須成分とする付加反応硬化型シリコン樹脂組成物が、耐熱性、耐変色性に優れた透明硬化物を与えることを知見し、本発明をなすに至った。

### 【0007】

以下、本発明につき更に詳しく説明する。

本発明に係る発光ダイオード (LED) 素子用シリコン樹脂組成物は、

(A) 1 分子中に少なくとも 2 個のケイ素原子に結合したアルケニル基を有するシリコンレジン、

(B) 1 分子中に少なくとも 2 個のケイ素原子に結合した水素原子を有するオルガノハイドロジェンシラン及び／又はオルガノハイドロジェンポリシロキサン、

(C) 付加反応触媒

を必須成分とする。その中でも、実ラインでの使用を考えた場合は、短時間で硬



化可能な加熱硬化型が好ましい。

#### 【0008】

ここで、(A) 成分のシリコンレジンとしては、下記平均組成式 (1)



(但し、式中 R は同一又は異種の置換又は非置換の一価炭化水素基、アルコキシ基又は水酸基で、全 R の 0.1 ~ 80 モル% がアルケニル基であり、n は  $1 \leq n < 2$ 、好ましくは  $1 \leq n \leq 1.8$ 、更に好ましくは  $1 \leq n \leq 1.5$  を満たす正数である。)

で示される 25℃での粘度が 10 mPa・s 以上の液状又は固体の分岐状又は三次元網状構造のオルガノポリシロキサンであることが好ましい。

#### 【0009】

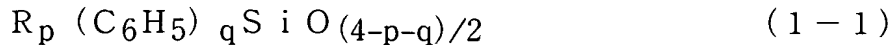
上記式 (1) において、R で示されるケイ素原子に結合した置換又は非置換の一価炭化水素基としては、通常、炭素数 1 ~ 12、好ましくは 1 ~ 8 程度のものが挙げられ、具体的にはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ネオペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、オクチル基、ノニル基、デシル基等のアルキル基、フェニル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基等のアリール基、ベンジル基、フェニルエチル基、フェニルプロピル基等のアラルキル基、ビニル基、アリル基、プロペニル基、イソプロペニル基、ブテニル基、ヘキセニル基、シクロヘキセニル基、オクテニル基等のアルケニル基や、これらの基の水素原子の一部又は全部をフッ素、臭素、塩素等のハロゲン原子、シアノ基等で置換したもの、例えばクロロメチル基、クロロプロピル基、ブロモエチル基、トリフロロプロピル基等のハロゲン置換アルキル基やシアノエチル基等が挙げられる。

#### 【0010】

この場合、R のうち少なくとも 2 個はアルケニル基 (炭素数 2 ~ 8 のものが好ましく、更に好ましくは 2 ~ 6 である) であることが必要である。なお、アルケニル基の含有量は、全有機基 (即ち、上記の置換又は非置換の一価炭化水素基) R 中 0.1 ~ 80 モル%、好ましくは 0.5 ~ 50 モル%、特に 1 ~ 30 モル% 程度とすることが好ましい。

## 【0011】

上記シリコンレジンの中では、高屈折率を得るために本レジンへのフェニル基の導入が有効であり、特に下記平均組成式(1-1)



(式中、Rは上記と同様であり、p, qは $1 \leq p+q < 2$ 、好ましくは $1 \leq p+q \leq 1.8$ 、更に好ましくは $1 \leq p+q \leq 1.5$ であり、かつ $0.20 \leq q/(p+q) \leq 0.95$ 、好ましくは $0.30 \leq q/(p+q) \leq 0.80$ 、更に好ましくは $0.45 \leq q/(p+q) \leq 0.70$ を満たす正数である。)

で示されるフェニル基高含有のシリコンレジンの使用が好ましい。

## 【0012】

上記シリコンレジンとしては、25℃での粘度が10 mPa・s以上、好ましくは100 mPa・s以上、更に好ましくは1000 mPa・s以上の液状又は固体であるものをベースポリマーとして使用することが好ましい。なお、(A)成分には、組成物の粘度や硬化物の硬度を調整する等の目的で、任意成分として必要に応じて分子鎖末端のケイ素原子、分子鎖途中のケイ素原子あるいは分子鎖末端及び分子鎖途中のケイ素原子に結合したアルケニル基(例えばビニル基)を含有し、主鎖がジオルガノシロキサン単位の繰り返しからなり、分子鎖両末端がトリオルガノシロキシ基で封鎖されたフェニル基含有あるいは非含有の直鎖状のジオルガノポリシロキサンを配合することもできる。

## 【0013】

次に、(B)成分のオルガノハイドロジェンシラン及び/又はオルガノハイドロジェンポリシロキサンは、(A)成分のアルケニル基含有シリコンレジンとヒドロシリル化反応により組成物を硬化させる架橋剤として作用するものであり、下記平均組成式(2)



(但し、式中R'は脂肪族不飽和炭化水素基を除く同一又は異種の置換又は非置換の一価炭化水素基、a, bは $0.7 \leq a \leq 2.1$ 、 $0.001 \leq b \leq 1.0$ 、かつ $0.8 \leq a+b \leq 2.6$ 、好ましくは $0.8 \leq a \leq 2$ 、 $0.01 \leq b \leq 1$ 、 $1 \leq a+b \leq 2.4$ を満たす正数である。)

で示される 1 分子中に少なくとも 2 個、好ましくは 3 個以上の Si-H 結合を有し、かつ 25℃での粘度が 1000 mPa・s 以下であるオルガノハイドロジェンポリシロキサン及び／又は  $R'_c \text{SiH}_{(4-c)}$  (但し、c は 1 又は 2) で示されるオルガノハイドロジェンシランが好ましい。

#### 【0014】

ここで、R' としては、式 (1) 中の R と同様の基を挙げることができるが、好ましくは脂肪族不飽和結合を有さないものがよい。

#### 【0015】

上記オルガノハイドロジェンシラン及びオルガノハイドロジェンポリシロキサンとしては、 $(\text{CH}_3)\text{SiH}_3$ 、 $(\text{CH}_3)_2\text{SiH}_2$ 、 $(\text{C}_6\text{H}_5)\text{SiH}_3$ 、1, 1, 3, 3-テトラメチルジシロキサン、1, 3, 5, 7-テトラメチルシクロテトラシロキサン、両末端トリメチルシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンポリシロキサン、両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体、両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体、両末端トリメチルシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンシロキサン・ジフェニルシロキサン共重合体、両末端トリメチルシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンシロキサン・ジフェニルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体、 $(\text{CH}_3)_2\text{HSiO}_{1/2}$  単位と  $\text{SiO}_{4/2}$  単位とからなる共重合体、 $(\text{CH}_3)_2\text{HSiO}_{1/2}$  単位と  $\text{SiO}_{4/2}$  単位と  $(\text{C}_6\text{H}_5)\text{SiO}_{3/2}$  単位とからなる共重合体などが挙げられる。

#### 【0016】

このオルガノハイドロジェンポリシロキサンの分子構造は、直鎖状、環状、分岐状、三次元網状構造のいずれであってもよいが、1 分子中のケイ素原子の数 (又は重合度) は 3 ~ 1000、特に 3 ~ 300 程度のものを使用することができる。

#### 【0017】

また、このオルガノハイドロジェンポリシロキサンの 25℃における粘度は、1000 mPa・s 以下、より好ましくは 0.1 ~ 500 mPa・s、更に好ま

しくは  $0.5 \sim 300 \text{ mPa} \cdot \text{s}$  であることが好ましい。

#### 【0018】

なお、(A) 成分のシリコーンレジンがフェニル基を有する場合、(B) 成分のオルガノハイドロジェンシラン及び／又はオルガノハイドロジェンポリシロキサンもフェニル基を有することが、透明性の確保、保存中の分離防止のためにも好ましい。この場合、上記式(2)において、ケイ素原子に結合する全基( $\text{R}'$ と水素原子)のうち5モル%以上、より好ましくは8～50モル%、更に好ましくは10～30モル%がフェニル基であることが好ましい。また、式(2)において、ケイ素原子に結合する全基( $\text{R}'$ と水素原子)のうち15モル%未満で好ましくは10モル%以上がフェニル基であるオルガノハイドロジェンポリシロキサンと、ケイ素原子に結合する全基( $\text{R}'$ と水素原子)のうち15モル%以上で好ましくは50モル%以下がフェニル基であるオルガノハイドロジェンポリシロキサンとを重量比1:9～9:1、特に3:7～7:3で併用したものが好ましい。

#### 【0019】

上記(B)成分のオルガノハイドロジェンシラン及び／又はオルガノハイドロジェンポリシロキサンの配合量は、(A)成分のシリコーンレジン100重量部に対して2～100重量部、特に10～100重量部とすることが好ましい。

#### 【0020】

また、このオルガノハイドロジェンシラン及び／又はオルガノハイドロジェンポリシロキサンは、(A)成分のシリコーンレジンあるいは該シリコーンレジンと前記した任意成分としてのアルケニル基含有直鎖状ジオルガノポリシロキサンとの合計中のケイ素原子に結合したアルケニル基に対する(B)成分中のケイ素原子に結合した水素原子(即ち、 $\text{Si-H}$ 基)のモル比が $0.5 \sim 5$ モル/モル、好ましくは $0.8 \sim 4$ モル/モル、より好ましくは1～3モル/モルとなる量で配合することもできる。

#### 【0021】

(C)成分の付加反応触媒は、(A)成分中のアルケニル基と(B)成分中の $\text{Si-H}$ 基とのヒドロシリル化付加反応を促進するための触媒であり、この付加反

応触媒としては、白金黒、塩化第2白金、塩化白金酸、塩化白金酸と一価アルコールとの反応物、塩化白金酸とオレフィン類との錯体、白金ビスアセトアセテート等の白金系触媒、パラジウム系触媒、ロジウム系触媒などの白金族金属触媒が挙げられる。なお、この付加反応触媒の配合量は触媒量とすることができるが、通常、白金族金属として(A)及び(B)成分の合計重量に対して1～500 ppm、特に2～100 ppm程度配合することが好ましい。

#### 【0022】

本発明の組成物には、上記(A)～(C)成分に加え、任意成分として硬化性、ポットライフを与えるために付加反応制御剤、硬度・粘度を調節するために例えばジメチルポリシロキサン等の前記したフェニル基含有又は非含有のアルケニル基を有する直鎖状のジオルガノポリシロキサンの他にも直鎖状の非反応性オルガノポリシロキサン、ケイ素原子数が2～10個程度の直鎖状又は環状の低分子オルガノポリシロキサンなどを本発明の効果を損なわない範囲で添加してもよい。

#### 【0023】

更に透明性に影響を与えない範囲で、強度を向上させるためにヒュームドシリカ等の無機質充填剤を配合してもよいし、必要に応じて波長調整剤、染料、顔料、難燃剤、耐熱剤、耐酸化劣化剤などを配合してもよい。

#### 【0024】

なお、上記組成物の硬化条件は特に制限されないが、120～180℃、30～180分の条件とすることが好ましい。

#### 【0025】

##### 【発明の効果】

本発明のシリコン樹脂組成物は、発光ダイオード素子の保護、封止や接着、波長変更・調整、レンズなど、発光ダイオード素子用として使用されて、耐熱性、耐変色性に優れた透明硬化物を与える。

#### 【0026】

##### 【実施例】

以下、実施例及び比較例を示し、本発明を具体的に説明するが、本発明は下記

の実施例に制限されるものではない。

### 【0027】

#### [実施例 1]

トルエン、エチルポリシリケート、ビニルジメチルクロロシラン、トリメチルクロロシランを仕込み、共加水分解にて重合し、 $\text{CH}_2=\text{CH}(\text{CH}_3)_2\text{SiO}_{1/2}$ 単位、 $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}_{1/2}$ 単位及び $\text{SiO}_2$ 単位からなり、 $[(\text{CH}_3)_3\text{SiO}_{1/2}\text{単位}+\text{CH}_2=\text{CH}(\text{CH}_3)_2\text{SiO}_{1/2}\text{単位}]/\text{SiO}_2\text{単位}=0.85$ モル/モル、ビニル基含有量 $=0.02\text{mol}/100\text{g}$ であるオルガノポリシロキサン樹脂共重合体（シリコーンレジン）の50重量%トルエン溶液を調製した。これに固形分として等量の末端がビニル基で封鎖された23℃の粘度が5000 mPa・sのジメチルポリシロキサンと混合した後、150℃で溶出分がなくなるまで減圧ストリップを行い、30000 mPa・sの液状材料を得た。このシリコーンレジンベースとして100重量部に対して、白金触媒を白金原子として20 ppm、反応制御剤としてテトラビニルテトラメチルテトラシクロシロキサンを0.5重量部添加した。この混合物100重量部に対して、水素ガス発生量が350 ml/gで粘度が23℃で20 mPa・sのメチルヒドロジェンシロキサンを硬化剤として6重量部添加し、混合した後、脱泡を行い、ガラス板で組んだ型の中に3 mm厚になるよう流し込み、120℃で1時間硬化させた。

### 【0028】

#### [実施例 2]

トルエン、フェニルトリクロロシラン、ビニルメチルジクロロシラン、ジメチルジクロロシランを仕込み、共加水分解後、重合し、 $(\text{C}_6\text{H}_5)\text{SiO}_{3/2}$ 単位、 $(\text{CH}_2=\text{CH})(\text{CH}_3)\text{SiO}_{2/2}$ 単位及び $(\text{CH}_3)_2\text{SiO}_{2/2}$ 単位からなり、平均組成が $(\text{CH}_3)_{0.65}(\text{C}_6\text{H}_5)_{0.55}(\text{CH}_2=\text{CH})_{0.25}\text{SiO}_{1.28}$ で示されるオルガノポリシロキサン樹脂共重合体（シリコーンレジン）の50重量%のトルエン溶液を調製した。このレジン溶解物100重量部に対して、ケイ素原子に結合したメチル基、フェニル基、水素原子（SiH基）の合計に対してフェニル基を20モル%有する水素ガス発生量が150 ml/gである粘度10 mPa・sのフェニルメチルヒドロジェンシロキサンを10重量部添加し、混合

した後、150℃で溶出分がなくなるまで減圧下でストリップを行った。これを室温まで冷却した後、反応制御剤としてエチニルシクロヘキサノールを0.2重量部添加した。この混合物に白金触媒を白金原子として20ppm添加後、攪拌混合、脱泡して実施例1と同様な型に流し込み、120℃で30分硬化させて、型より脱型後、180℃の乾燥機で2時間ポストキュアーを行い、サンプルを得た。

### 【0029】

#### [実施例3]

トルエン、フェニルトリクロロシラン、ビニルメチルジクロロシラン、ジメチルジクロロシランを仕込み、共加水分解後、重合し、 $(C_6H_5)SiO_{3/2}$ 単位、 $(CH_2=CH)(CH_3)SiO_{2/2}$ 単位及び $(CH_3)_2SiO_{2/2}$ 単位からなり、平均組成が $(CH_3)_{0.65}(C_6H_5)_{0.55}(CH_2=CH)_{0.25}SiO_{1.28}$ で示されるオルガノポリシロキサン樹脂共重合体（シリコーンレジン）の50重量%のトルエン溶液を調製した。このレジン溶解物100重量部に対して、ケイ素原子に結合したメチル基、フェニル基、水素原子（SiH基）の合計に対してフェニル基を20モル%有する水素ガス発生量が150ml/gである粘度10mPa・sのフェニルメチルヒドロジェンシロキサンを20重量部及びケイ素原子に結合したメチル基、フェニル基、水素原子（SiH基）の合計に対してフェニル基を10モル%有する水素ガス発生量が120ml/gである粘度20mPa・sのフェニルメチルヒドロジェンシロキサンを10重量部添加し、混合した後、150℃で溶出分がなくなるまで減圧下でストリップを行った。これを室温まで冷却した後、反応制御剤としてエチニルシクロヘキサノールを0.2重量部添加した。この混合物に白金触媒を白金原子として20ppm添加後、攪拌混合、脱泡して実施例1と同様な型に流し込み、120℃で30分硬化させて、型より脱型後、180℃の乾燥機で2時間ポストキュアーを行い、サンプルを得た。

### 【0030】

#### [比較例]

一般的に砲弾型LEDに使用されている透明エポキシ材料を入手し、実施例と

同様に型に流し込み、150℃で8時間の硬化を行い、サンプルを得た。

### 【0031】

上記実施例、比較例の一般物性を表1に示す。

【表1】

項 目	実施例1	実施例2	実施例3	比較例
主剤の屈折率	1.41	1.51	1.51	1.51
硬さ(Shore D)		75	74	85
硬さ(Shore A)	77			
曲げ強度(MPa)*		100	95	135
引張り強さ(MPa)**	5.4			

\*:JIS K 6911

\*\* :JIS K 6249

### 【0032】

次に、上記実施例、比較例の光透過率を下記方法により評価した。

評価方法：

作成したサンプルの光透過率を400nmで測定して初期値とした。これをサンシャインウエザーメーター（スガ試験機）にて紫外線を照射し、100時間後及び500時間後の光透過率を測定した。その結果を表2に示す。

### 【0033】

【表2】

項 目	実施例1	実施例2	実施例3	比較例
初 期	95	95	94	97
100時間後	91	93	92	81
500時間後	92	91	90	65

### 【0034】

また、同様に作成したサンプルを利用し、120℃の乾燥機に放置し、100時間及び500時間後の光透過性を測定した。その結果を表3に示す。

### 【0035】



【表 3】

項 目	実施例1	実施例2	実施例3	比較例
初 期	95	95	94	97
100時間後	92	90	92	78
500時間後	92	88	90	65

【書類名】 要約書

【要約】

【解決手段】 (A) 1 分子中に少なくとも 2 個のケイ素原子に結合したアルケニル基を有するシリコンレジン、

(B) 1 分子中に少なくとも 2 個のケイ素原子に結合した水素原子を有するオルガノハイドロジェンシラン及び／又はオルガノハイドロジェンポリシロキサン、

(C) 付加反応触媒  
を必須成分とすることを特徴とする発光ダイオード (LED) 素子用シリコン樹脂組成物。

【効果】 本発明のシリコン樹脂組成物は、発光ダイオード素子の保護、封止や接着、波長変更・調整、レンズなど、発光ダイオード素子用として使用されて、耐熱性、耐変色性に優れた透明硬化物を与える。

【選択図】 なし

特願 2 0 0 2 - 3 4 7 6 0 3

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 2 0 6 0 ]

1 . 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 2 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都千代田区大手町二丁目 6 番 1 号

氏 名

信越化学工業株式会社

2 . 変更年月日

2 0 0 3 年 4 月 1 1 日

[変更理由]

名称変更

住所変更

住 所

東京都千代田区大手町二丁目 6 番 1 号

氏 名

信越化学工業株式会社